

Cited Reference:

No. H11-244683 A
(1999)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-244683

(43) 公開日 平成11年(1999) 9月14日

(51) Int.Cl.⁸

識別記号

F I

B 0 1 J 2/08

B 0 1 J 2/08

C 0 1 D 15/02

C 0 1 D 15/02

G 2 1 B 1/00

G 2 1 B 1/00

N

審査請求 未請求 請求項の数 8 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平10-61946

(22) 出願日

平成10年(1998) 2月27日

特許法第30条第1項適用申請有り 1997年10月14日~10月17日 社団法人日本原子力学会主催の「日本原子力学会1997年秋の大会」において文書をもって発表

(71) 出願人 000004097

日本原子力研究所

東京都千代田区内幸町2丁目2番2号

(71) 出願人 000165697

原子燃料工業株式会社

東京都港区虎ノ門四丁目3番13号

(72) 発明者 河村 弘

茨城県東茨城郡大洗町成田町字新堀3607番

地 日本原子力研究所大洗研究所内

(72) 発明者 土谷 邦彦

茨城県東茨城郡大洗町成田町字新堀3607番

地 日本原子力研究所大洗研究所内

(74) 代理人 弁理士 佐藤 正年 (外1名)

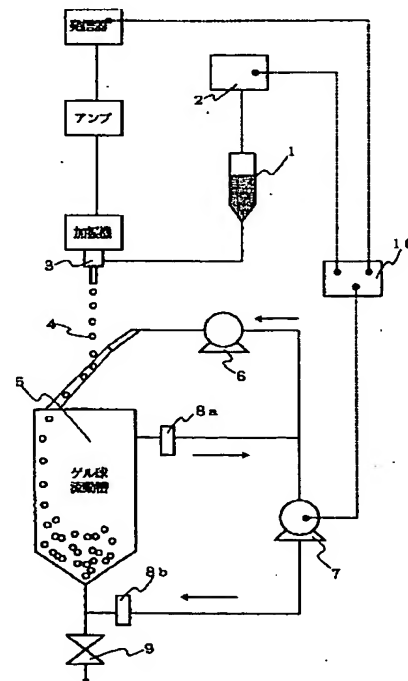
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 湿式造粒方法及び装置

(57) 【要約】

【課題】 ゲル化前の液滴が変形せずに反応液と接触できる湿式造粒方法及び装置を提供する。

【解決手段】 高分子樹脂化合物の水溶液に原料粉末を分散して得た原液を、反応槽内へ流下するゲル化反応液の流れに乗せるように滴下する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 原料粉末を高分子樹脂化合物の水溶液に分散せしめてなる原液をノズルから滴下することにより原液の液滴を形成し、反応槽内において前記水溶液をゲル化させる反応液に液滴を接触させることにより、原料粉末の分散したゲル粒を形成する湿式造粒方法において、

反応液を前記反応槽の上方から槽内に流下させ、この流下する反応液の流れに液滴を滴下して合流させる工程を備えたことを特徴とする湿式造粒方法。

【請求項 2】 液滴と合流する邂逅点近傍における反応液の流れの下向きの流速が液滴の自由落下速度とほぼ一致するように、反応液の流下の流量及び／又は方向を調整することを特徴とする請求項 1 に記載の湿式造粒方法。

【請求項 3】 前記反応槽内に底部から上方に向かう反応液の流れを形成することを特徴とする請求項 1 に記載の湿式造粒方法。

【請求項 4】 原料粉末を高分子樹脂化合物の水溶液に分散せしめてなる原液を供給する原液供給設備と、前記水溶液をゲル化させる反応液が収容された反応槽と、前記原液供給設備から供給される原液を滴下して合流させるノズル装置とを備えた湿式造粒装置において、反応液を反応槽内に上方から流下させる反応液流下装置を備え、前記反応液流下装置が反応槽の上方に形成した反応液の流れに、前記ノズル装置が原液を滴下することを特徴とする湿式造粒装置。

【請求項 5】 前記反応液流下装置が、反応液の流下流量を調整する流量調整手段を備えていることを特徴とする請求項 4 に記載の湿式造粒装置。

【請求項 6】 前記反応液流下装置が、反応液の流下方向を調整する方向調整手段を備えていることを特徴とする請求項 4 に記載の湿式造粒装置。

【請求項 7】 前記反応槽内に底部から上方に向かう反応液の流れを形成する反応液循環機構が前記反応槽に付設されていることを特徴とする請求項 4 に記載の湿式造粒装置。

【請求項 8】 前記原液供給設備が、内圧によって原液を前記ノズル装置に供給する原液貯槽と、該原液貯槽の内圧を制御することにより前記ノズル装置へ供給される原液の流量を調整する圧力制御手段を備えていることを特徴とする請求項 4 に記載の湿式造粒装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、酸化リチウム粒等の粒子を製造する際に用いられる湿式造粒方法及び装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 近年、粉末を粒状に加工する方法として

湿式造粒法が注目されている。湿式造粒法としては様々な方法が提案されているが、その中の 1 つとして、ゲル化する溶媒の中に原料粉末を分散して原液とし、この原液を反応液が充填された反応槽中に滴下することにより滴下時に形成された粒の形を固定して粒状とする方法が挙げられる。この場合、得られた粒体はゲル中に原料粉末が分散したものであるため、加熱などによりゲルを取り除いて原料粉末のみからなる粒体とする作業が行われている。

10 【0003】 例えば、核融合炉のトリチウム増殖材として知られている Li_2O を形成させる場合では、原料粉末として Li_2CO_3 粉末を用い、湿式造粒法により粒の形を固定してから加熱してゲルの除去を行うと共に Li_2CO_3 を反応させて Li_2O とすることにより Li_2O 粒を得る方法が提案されている。

【0004】 具体的に述べると、アセトンとの接触によりゲル化するポリビニルアルコールの水溶液中に Li_2CO_3 粉末を分散させて原液とし、この原液をアセトンの液浴中に滴下して前記水溶液をゲル化させ、 Li_2CO_3 粉末が分散したゲル粒を得た後、このゲル粒を高温で加熱してゲルを取り除くと共に Li_2CO_3 を反応させて Li_2O 粒とする方法である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 上述の方法においては、原液の滴下により形成した液滴を、反応液中に自由落下させることにより反応液と接触させているため、液滴の自由落下速度のベクトルと、このベクトルに対抗する垂直抗力、即ち、反応液の表面張力及び水圧とにより、液滴が反応液と接触する瞬間に衝撃がかかり、この衝撃により液滴が変形してその状態でゲル化し、変形した形状のまま固定してしまうことがある。

【0006】 また、原液の滴下は連続的に行うので、初めの方で反応液中に滴下されて浸漬したゲル粒の上に次々と新規なゲル粒が沈積し、ゲル粒が変形してしまう恐れもある。

【0007】 本発明は、ゲル化前の液滴が反応液と接触する際の変形を極力防止することのできる湿式造粒方法及び装置を提供することを主目的とする。また、反応液中において浸漬したゲル粒の形を保ったまま保持できる湿式造粒方法及び装置を提供することも本発明の別の目的である。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記の目的を達成するため、請求項 1 に係る発明は、原料粉末を高分子樹脂化合物の水溶液に分散せしめてなる原液をノズルから滴下することにより原液の液滴を形成し、反応槽内において前記水溶液をゲル化させる反応液に液滴を接触させることにより、原料粉末の分散したゲル粒を形成する湿式造粒方法において、反応液を前記反応槽の上方から槽内に流下させ、この流下する反応液の流れに液滴を滴下して合

流させる工程を備えたことを特徴としている。

【0009】請求項1の発明は、高分子樹脂化合物の水溶液に原料粉末を分散して得た原液を、反応液と接触させるために滴下するに際し、原液を静止している反応液の中に滴下するのではなく、反応液を充填した反応槽内に流下する反応液の流れ（以後、反応液流と称す。）の中に滴下するものとしている。

【0010】即ち、静止する反応液中に液滴を滴下したときに比べて反応液流に液滴を滴下したときの方が液滴と反応液との相対移動速度の差が縮まるので、液滴が反応液流に接した瞬間の衝撃は柔らげられる。従って、液滴が反応液流に接触した時にかかる衝撃による液滴の変形を極力少なくすることができる。

【0011】また、反応液流に取り込まれた液滴はゲル化しながら、反応液流と共に反応槽に向かって流下する。反応槽内の水面に達すると、反応液流の自由落下のベクトルと、このベクトルに対抗する垂直抗力、即ち、反応槽内の反応液の表面張力及び水圧とにより衝撃が生じるが、反応液流は継続的に反応槽内に流れ込むため、反応槽内の反応液に反応液流の流れ方向に沿った流れが生じる。

【0012】即ち、継続的な反応液流の流入により、反応液流の落下に対抗する力が弱まるので、反応液流中に取り込まれた液滴に掛かる衝撃は、静止する流体中に液滴のみを滴下した場合に比べて柔らげられる。従って、液滴が反応槽内の反応液の水面に達した時にかかる衝撃による液滴の変形を少なくすることができる。

【0013】また、反応液流の流下速度については、ここでは特に限定しないが、液滴が合流する位置での反応液流の下向きの流速が、液滴の自由落下速度と相対的にほぼ等しい速度とするとよい。尚、液滴の自由落下速度は、反応液流との接触位置が同じ高さ位置であれば、ノズルが配された高さ位置により左右されるので、液滴の滴下速度に合わせて反応液流の流下速度を決定すれば、液滴の大きさに関係なく液滴が反応液流に接触した時にかかる衝撃による液滴の変形を少なくすることができるので好ましい。或いはまた、反応液流の流下速度に対してノズルの配置高さを調節することによっても同等の作用を果たすことができる。

【0014】尚、本発明で述べる原料粉末とは最終的に必要とする粒子と等しい組成の粉末や、 Li_2CO_3 のように加熱などの処理により原料粉末自体が化学反応を起こして最終的に必要とする粒子の組成に変化する粉末等を選択することができる。

【0015】尚、高分子樹脂化合物は、選択した原料粉末に適したものを選択するとよい。例えば、原料粉末として、最終的に必要とする粒子と等しい組成の粉末や、後の加熱処理により原料粉末自体が化学反応を起こすものを選択した場合は、原料粉末と反応せず、加熱などの物理的処理や他の薬品などによる化学的処理により簡単

に取り除ける種類の高分子樹脂化合物を選択すればよいし、原料粉末が高分子樹脂化合物とある温度で反応して最終的に必要とする粒子と等しい組成となる場合は反応に適した種類の高分子樹脂化合物を選択することが挙げられる。

【0016】また、請求項2の発明は、請求項1に記載の湿式造粒方法において、液滴と合流する邂逅点近傍における反応液の流れの下向きの流速が液滴の自由落下速度とほぼ一致するように、反応液の流下の流量及び／又は方向を調整することを特徴としている。

【0017】即ち、請求項2の発明は、液滴が反応液流と合流する位置での反応液流の流下の流量及び／又は方向を液滴の自由落下速度とほぼ一致するように調整することで、反応液流と液滴との相対移動速度の差がほぼなくなるので、液滴が反応液流に接した瞬間に生じる衝撃がかなり小さくなり、液滴が反応液流に接触した時にかかる衝撃による液滴の変形を極力少なくすることができる。

【0018】更に、請求項3の発明は、請求項1に記載の湿式造粒方法において、前記反応槽内に底部から上方に向かう反応液の流れを形成することを特徴としている。

【0019】即ち、請求項3の発明では、反応槽内に底部から上方に向かう反応液の流れを形成することにより、反応槽内のゲル粒を常に循環させて一カ所にゲル粒を沈積させないものとしている。

【0020】これにより、ゲル粒の沈積によるゲル粒の変形を防いで真球性の高いゲル粒が効率よく得られるだけでなく、反応液流の落下に対抗する力も弱められるので、反応液流中に取り込まれた液滴に掛かる衝撃を柔らげることができ、この点からも真球性の高いゲル粒が得られる率を高められる。

【0021】好ましくは、反応槽上方から流れ込む反応液流の流下速度と同じ速度で槽内の反応液が流れるように調整すれば、反応液流が流れ込んだ際の衝撃が少なくなるので反応液流と共に流れ込むゲル粒がこの衝撃により変形する恐れが少ないという利点がある。

【0022】また、請求項4の発明の湿式造粒装置は、原料粉末を高分子樹脂化合物の水溶液に分散せしめてなる原液を供給する原液供給設備と、前記水溶液をゲル化させる反応液が収容された反応槽と、前記原液供給設備から供給される原液を滴下して合流させるノズル装置とを備えた湿式造粒装置において、反応液を反応槽内に上方から流下させて反応液流を形成する反応液流下装置を備え、この反応液流下装置が反応槽の上方に形成した反応液の流れに、前記ノズル装置が原液を滴下することを特徴としている。

【0023】即ち、本発明の湿式造粒装置は、反応液流下装置が反応液を上方から反応槽内に向かって流下させることにより、反応槽に向かう反応液の流れ（反応液

10

20

30

40

50

流)を形成し、この流れ中にノズル装置が原液を滴下する構成のものである。

【0024】反応液流下装置は、反応槽に向かう反応液の流れ(反応液流)を形成するものであれば良く、そのようなものとして例えば、反応液が充填されたタンクからポンプや弁などを介して一定量ずつ反応槽内に流出させる構成や、反応槽内からポンプなどの汲み上げ装置により反応液を汲み上げ、これを反応槽内に流出させる構成が挙げられる。また、反応液流下装置により形成される反応液流の流速は、液滴の自由落下速度に合わせて調整すると良い。

【0025】本発明の装置において用いられるノズル装置は、例えば、タンクなどの原液供給設備から供給された原液から液滴を形成して、反応液流下装置により形成された反応液流中に液滴を滴下するものであればとくに限定しない。

【0026】ノズル装置として用いられるものとして、例えば、振動ノズルが挙げられる。振動ノズルより原液を滴下する場合、体積流量を Q 、液滴の直径を d 、振動ノズルの振動数を f とした時、これらは、 $Q = [(\pi d^3) / 6] \cdot f$ と表すことができる。これより、液滴の直径の調整は、振動ノズルの振動数と体積流量とを調整することで簡単に行うことが可能である。

【0027】つまり、振動ノズルの振動数と体積流量とを調整すれば、簡単に液滴の直径を調節することができるので、ノズル装置として振動ノズルを用いれば、所望寸法の粒径を備えた液滴を簡単に、且つ、均一な形状のものを大量に形成させることができるという利点がある。勿論、振動ノズルに限らず他の方法により液滴の直径を調節しても構わない。

【0028】また、請求項5の発明は、請求項4に記載の湿式造粒装置において、前記反応液流下装置が、反応液の流下流量を調整する流量調整手段を備えていることを特徴としている。

【0029】即ち、流量調整手段が反応液の流下流量を調整することにより、反応液流下装置が形成する反応液流の流下速度が調整されるので、液滴に対する相対移動速度の制御が可能である。そのため、液滴が反応液流に接触した時にかかる衝撃が最も小さくなるように反応液流の流下速度を調整して液滴の変形を少なく制御することができる。

【0030】更に、請求項6の発明では、請求項4に記載の湿式造粒装置において、前記反応液流下装置が、反応液の流下方向を調整する方向調整手段を備えていることを特徴とするものとしている。

【0031】即ち、方向調整手段が反応液の流下方向を調整することにより、反応液流下装置が形成する反応液流の流下方向が変わり、液滴が反応液流と接触する位置をずらすことができる。

【0032】液滴の自由落下速度は距離が長くなれば長

くなるほど速くなるため、液滴が反応液流と接触する位置をずらせば、液滴の自由落下速度が変わるので反応液流と液滴との相対移動速度の差が小さくなるように調節することができる。これにより液滴が反応液流に接した瞬間に生じる衝撃をかなり抑えられるので、液滴が反応液流に接触した時の衝撃による液滴の変形を極力少なくすることができる。

【0033】また、請求項7の発明では、請求項4に記載の湿式造粒装置において、前記反応槽内に底部から上方に向かう反応液の流れを形成する反応液循環機構が前記反応槽に付設されていることを特徴としている。

【0034】即ち、反応液循環機構が反応槽内の反応液を底部から上方に向かうように循環させるため、ゲル球は反応液と共に反応槽内で循環することとなる。これによりゲル球の沈積により先に形成されたゲル球が次に形成されたゲル球の下敷きとなって押し潰されることがないので真球性の高いゲル粒が効率よく得られる。

【0035】また、反応液流下装置で形成された反応液流によって反応槽内に形成される流れに沿うように、反応液循環機構が反応液を循環させる構成とすることにより、液滴が反応槽内に流下する際に受ける衝撃をより小さくすることができるので、ゲル球が反応槽内に到達した際の衝撃により変形することなく、より真球性の高いゲル粒が得られる。

【0036】これにより、ゲル粒の沈積によるゲル粒の変形を防いで真球性の高いゲル粒が効率よく得られるだけでなく、反応液流の落下に対抗する力も弱められるので、反応液流中に取り込まれた液滴に掛かる衝撃を柔らげることができ、この点からも真球性の高いゲル粒が得られる率を高められる。

【0037】そのような反応液循環機構の一例として、反応槽の上部側からポンプにより反応液を汲み上げて反応槽の底部側から反応槽内に向かって反応液を吐出する構成が挙げられる。この構成の場合、反応液の汲み出し量は、少なくとも槽内の底部から上部に向かう反応液の流れが形成される流量に調整する。

【0038】好ましくは、反応槽上方から流れ込む反応液流の流下速度と同じ速度で槽内の反応液が循環するように調整すれば、反応液流が流れ込んだ際の衝撃が少なくなるので反応液流と共に流れ込むゲル粒がこの衝撃により変形する恐れが少ないという利点がある。

【0039】更に、請求項8の発明は、請求項4に記載の湿式造粒装置において、前記原液供給設備が、内圧によって原液を前記ノズル装置に供給する原液貯槽と、該原液貯槽の内圧を制御することにより前記ノズル装置へ供給される原液の流量を調整する圧力制御手段を備えていることを特徴としている。

【0040】即ち、圧力制御手段が原液貯槽内の圧力を制御して原液貯槽からノズルに送る原液を押し出す構成とすることにより、滴下原液を連続して定量的に送り出

することが容易となるので、液滴の粒径制御が更に容易となる。そのため、より均一な寸法の粒体を大量に得ることが可能である。

【0041】

【発明の実施の形態】図1は本発明の一実施形態を示す概略説明図である。ここでは一例として、原料粉末として Li_2CO_3 、高分子樹脂化合物としてポリビニルアルコール（完全鹸化物、重合度約2000）を用い、ポリビニルアルコールの水溶液に原料粉末を均一に分散させ、26 wt %の Li_2CO_3 粉末、4.5wt%のポリビニルアルコールを含む水溶液を原液として用いた。また、この原液をゲル化させる反応液として、アセトンを用いた。

【0042】この装置は、外気と遮断されたチャンバ内に上記原液を保持する滴下原液貯槽1と、チャンバ内に空気を送り込む送り出しポンプ（図示せず）を含む圧力制御装置2と、チャンバから送り出された原液を一定量ずつ滴下する振動ノズル3と、循環ポンプ7によりフィルタ8aを介して汲み上げたアセトンを底部側からフィルタ8bを介して供給する反応液循環機構を備えた反応槽5と、振動ノズル3と反応槽5との間に反応槽5に向かうアセトンの流れを形成する流下ポンプ6と、制御手段10とを備えている。

【0043】滴下原液貯槽1内の原液は、圧力制御装置2により滴下原液貯槽1内に空気が送り込まれた分だけ振動ノズル3に送り込まれる。この実施形態では、滴下原液の送り出し流量が約50mL/minとなるように、制御手段10が圧力制御装置2による空気の送り込み量を調節している。

【0044】振動ノズル3は、上記滴下原液貯槽1からの原液の送り出し流量と加振機による縦方向の振動との兼ね合いにより液滴4を形成させる。加振機は、発振器から発振されアンプにより振幅調整された振動を受けて振動ノズル3を縦方向に振動させる。この実施形態では、振動ノズル3が内径1.0 mmの滴下ノズルを有し、加振機に対して周波数100 Hzの振動が与えられているため、約50mL/minの送り出し流量で滴下ノズルに送り込まれた原液は、直径約1.5 mmの液滴4となった。

【0045】尚、液滴4の寸法は、ノズルの内径と、滴下原液貯槽1からの原液流量と、加振機による縦方向の振動とにより決定されるので、これらを適宜調整することで容易に所望の大きさの液滴4を得ることが可能である。

【0046】振動ノズル3から滴下された液滴4は、振動ノズル3と反応槽5との間に形成されたアセトン流に合流する。このアセトン流は、流下ポンプ6が反応槽5の上部側からフィルタ8aを介して汲み上げたアセトンを、反応槽5の上方から反応槽5に向かって流出することにより形成されている。

【0047】流下ポンプ6の吐出量は、ノズルから滴下されてくる液滴4がアセトン流と合流する位置におい

て、アセトン流の下向きの流速が液滴4の自由落下速度とほぼ同等となるように調整されている。

【0048】アセトン流に合流した液滴4は、ゲル化しながらアセトン流と共に反応槽5内に流れ込む。反応槽5には、 -20°C に温度調節したアセトンが充填されており、このアセトンには、反応液循環機構により槽内に底部から上部に向かう流れが形成されている。反応液循環機構は反応槽5内のゲル球の吸い込み防止のために設けたフィルタ8aを介して槽内のアセトンを流下ポンプ6と共に上部側から汲み出し、底部側から吐出する循環ポンプ7を備えている。そのため、反応槽5内に流れ込んだアセトンは、反応液循環機構により形成された循環流と共に反応槽内を循環することとなる。

【0049】尚、このときのアセトン汲み出し量は、反応槽上方から流れ込むアセトン流の流下速度と同じ速度で槽内のアセトンが循環するように制御手段10が循環ポンプ7を制御している。これにより、アセトン流が流れ込んだ際に生じる衝撃が小さくなるのでアセトン流と共に流れ込むゲル粒がこの衝撃により変形する恐れが少ないという利点がある。

【0050】一定量の原液の連続的滴下が終了後、反応槽5内においてゲル粒を循環させながら放置し熟成した。1時間経過後、循環ポンプ7を停止させてから反応槽5の底部に連結するバルブ9を開け、ゲル粒をアセトンごと放出した。その後、ゲル粒のみを篩いによりアセトンから取り出した。

【0051】取り出したゲル粒を、大気中、常温（約 25°C ）下で24時間乾燥させ、乾燥ゲル粒とした。この乾燥ゲル粒を真空中、 400°C で6時間加熱する。これにより、ポリビニルアルコール水溶液のゲルが除去され Li_2CO_3 粒となる。

【0052】更に、 700°C に昇温し、30時間加熱する。これにより、 Li_2CO_3 が熱分解されて Li_2O となる。その後、 1100°C まで昇温し、 1100°C で4時間保持して Li_2O を焼結させ、平均密度83%T.D.、平均直径約0.65mmの Li_2O 微小焼結粒を得た。

【0053】このようにして得られた Li_2O 微小焼結粒の1000粒について、それぞれの直径分布と真球度とを測定した結果、かなり精度良く粒径の揃った真球度の高い Li_2O 微小焼結粒が得られた。

【0054】

【発明の効果】このように、本発明では、液滴が反応液に接する瞬間に生じる衝撃をかなり低く抑えられるので、ゲル化前の液滴が殆ど変形せずに反応液と接触でき、真球度が高く、均質な粒体を効率よく得ることができる。

【0055】また、ゲル粒は反応槽内で強制的に循環させられるので、反応槽内で沈積して他のゲル粒により押し潰されて変形することがないという利点もある。

【図面の簡単な説明】

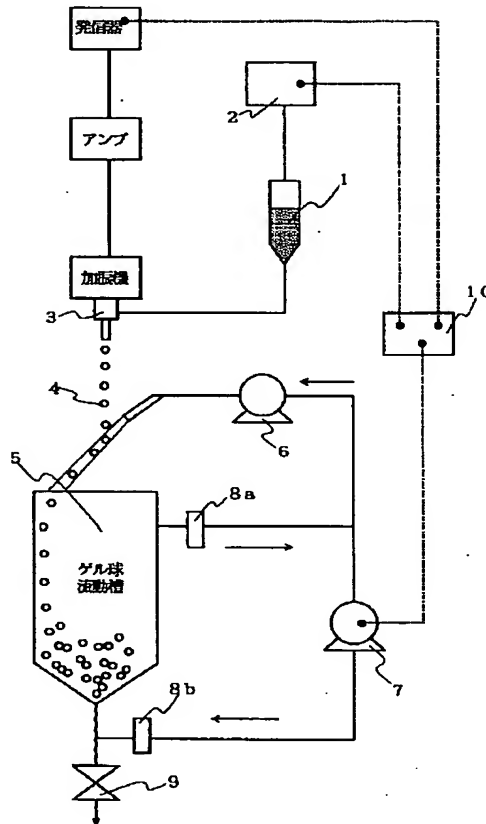
【図 1】本発明の一実施形態を示す概略説明図である。

【符号の説明】

- 1 : 滴下原液貯槽
2 : 圧力制御装置
3 : 振動ノズル
4 : 液滴

- * 5 : 反応槽
6 : 流下ポンプ
7 : 循環ポンプ
8 a, 8 b : フィルタ
9 : バルブ
* 10 : 制御手段

【図 1】



フロントページの続き

(72) 発明者 淵之上 克宏
茨城県那珂郡東海村村松1220-496

(72) 発明者 澤田 博司
茨城県那珂郡東海村村松1220-496
(72) 発明者 大橋 準平
茨城県ひたちなか市勝田本町18-12-102

-PARTIAL TRANSLATION-

Unexamined Patent Application Publication No. H11-244683(1999)
Publication Date: September 14, 1999
Application No. H10-61946
Application Date: February 27, 1998

Inventors: Hiroshi Kawamura and Kunihiro Tsuchiya
Applicants: JAPAN ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE, and
NUCLEAR FUEL INDUSTRIES, LTD.

Title of the Invention: Wet Granulation Method and Apparatus Therefor

[0046]

Drops 4 allowed to fall from a vibrating nozzle 3 join a flow of acetone formed between the vibrating nozzle 3 and the reaction tank 5. Acetone forming this flow is drawn by a shifter pump 6 from an upper part of the reaction tank 5 through a filter 8a. The drawn acetone is forced to flow from a position above the reaction tank 5 toward the reaction tank 5. The flow of acetone is thus formed.

[0047]

The discharge of the shifter pump 6 is adjusted so that the downward flow velocity of the acetone flow is approximately the same as the free fall velocity of the drops 4.

[0048]

Drops 4, which have joined the flow of acetone, flow into the reaction tank 5, while they are being gelled. In the reaction tank 5 is stored acetone whose temperature has been adjusted to -20°C. A current flowing upward from the bottom of the reaction tank is formed in the acetone by a reaction liquid-circulating mechanism. The reaction liquid-circulating mechanism is equipped with a circulation pump 7 which, in cooperation with the shifter pump 6, sucks acetone in the reaction tank from an upper part of the tank through the filter 8 which is fixed in order to prevent them from sucking gelled drops in the reaction tank 5, and pours the sucked acetone out into the tank through the bottom. The acetone that has flowed into the reaction tank 5 thus moves with the circulating current formed by the reaction liquid-circulating mechanism.